

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-357977

(P2001-357977A)

(43) 公開日 平成13年12月26日 (2001.12.26)

(51) Int.Cl.
H 05 B 33/14
C 09 K 11/06

識別記号
6 6 0

F I
H 05 B 33/14
C 09 K 11/06

テマコト(参考)
B 3 K 0 0 7
6 6 0

審査請求 未請求 請求項の数4 O.L (全 17 頁)

(21) 出願番号 特願2000-175981(P2000-175981)

(71) 出願人 000005201

富士写真フィルム株式会社
神奈川県南足柄市中沼210番地

(22) 出願日 平成12年6月12日 (2000.6.12)

(72) 発明者 田口 敏樹
神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フィルム株式会社内
三島 雅之
神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フィルム株式会社内

(74) 代理人 100076439
弁理士 飯田 敏三

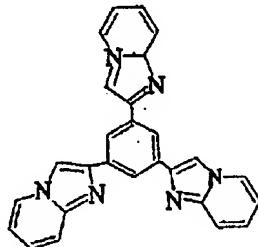
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 高輝度、高効率発光可能で耐久性に優れる有機電界発光素子を提供する。

【解決手段】 基板上に設けた一対の電極間に有機発光層もしくは有機発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機発光層もしくは有機化合物層の少なくとも1層に一般式1、例えば式HT-7の窒素原子を縮合部に有する縮合ヘテロ環骨格を有する化合物とイリジウム錯体等のオルトメタル化錯体を含有する有機電界発光素子。



(Xは炭素もしくは窒素、Z₁とZ₂は独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。)

NT-7

【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に設けた一対の電極間に有機発光層もしくは有機発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機発光層もしくは有機化合物層の少なくとも1層に窒素原子を縮合部に有する縮合ヘテロ環骨格を有する化合物とオルトメタル化錯体を含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項2】 窒素原子を縮合部に有する縮合ヘテロ環骨格を有する化合物が、下記一般式(1)で表される化合物であることを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

一般式(1)

【化1】



式中、Xは炭素原子もしくは窒素原子を表す。Z₁ならびにZ₂は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。

【請求項3】 オルトメタル化錯体がイリジウム錯体であることを特徴とする請求項1または2に記載の有機電界発光素子。

【請求項4】 有機発光層が高分子化合物を含有することを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、発光素子に関するものであり、特に高輝度で発光効率の高く、耐久性に優れる有機電界発光素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】今日、種々の発光素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機電界発光(EEL)素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるために、有望な発光素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている(アブライド フィジックス レターズ, 51巻, 913頁, 1987年)。この文献に記載された発光素子はトリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム錯体(A1q)を電子輸送材料として用い、正孔輸送材料(アミン化合物)と積層させることにより、従来の単層型素子に比べて発光特性を大幅に向上去させている。

【0003】近年、有機EEL素子をカラーディスプレイへと適用することが活発に検討されているが、高性能カラーディスプレイを開発する為には青・緑・赤、それぞれの発光素子の特性を向上させる必要がある。発光素子特性向上の手段として、イリジウム錯体(Ir(ppy)₃)からの発光を利用した緑色発光素子が報告されている(Applied Physics Letters 75, 4 (1999)). 本素子は外部量子収率8%を達しており、従来素子の限界

といわれていた外部量子収率5%を凌駕しているが、耐久性に問題があり、その改良が望まれていた。

【0004】一方、有機発光素子において高輝度発光を実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層している素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子では発光輝度、発光効率の点で蒸着方式で作製した素子に劣っており、高輝度、高効率発光化が大きな課題となっていた。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は上記のような実情に鑑みてなされたものであり、高輝度、高効率発光可能で耐久性に優れた有機電界発光素子を提供することにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】この課題は下記に記載の発光素子によって達成された。

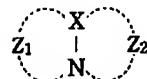
(1) 基板上に設けた一対の電極間に有機発光層もしくは有機発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機発光層もしくは有機化合物層の少なくとも1層に窒素原子を縮合部に有する縮合ヘテロ環骨格を有する化合物とオルトメタル化錯体を含有することを特徴とする有機電界発光素子。

(2) 窒素原子を縮合部に有する縮合ヘテロ環骨格を有する化合物が、下記一般式(1)で表される化合物であることを特徴とする(1)項に記載の有機電界発光素子。

一般式(1)

【0007】

【化2】



【0008】式中、Xは炭素原子もしくは窒素原子を表す。Z₁ならびにZ₂は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。

(3) オルトメタル化錯体がイリジウム錯体であることを特徴とする(1)または(2)項に記載の有機電界発光素子。

(4) 有機発光層が高分子化合物を含有することを特徴とする(1)～(3)項のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【0009】

【発明の実施の形態】本発明で用いるヘテロ環化合物とは、窒素原子を縮合部に有する縮合ヘテロ環骨格を有する化合物である。本発明で用いる化合物としては、縮合部の窒素原子の他に、好ましくはN、O、S原子から選ばれる原子をさらに1つ以上有するものであり、さらに好ましくは窒素原子を全骨格内に2つ以上有する芳香族

ヘテロ環であり、特に好ましくはN原子の1つが縮合部に存在し、さらにヘテロ芳香族環内の縮合部でない位置にもう1つの窒素原子を有する芳香族ヘテロ環である。縮合したヘテロ環のそれぞれの環員数として好ましいものは、3～8員環、好ましくは5もしくは6員環である。

【0010】本発明で用いるヘテロ環の骨格としては、例えばインドリジン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロピリミジン、ピラゾロトリアジン、イミダゾイミダゾール、イミダゾピリダジン、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、トリアゾロピリジンなどが挙げられ、好ましくはイミダゾピリダジン、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、トリアゾロピリジンである。

【0011】上記に述べた骨格を形成するために、一般式(1)中、Xは炭素原子もしくは窒素原子を表す。好ましくは、Xは炭素原子である。Z₁ならびにZ₂は、それぞれ独立に含窒素ヘテロ環を形成可能な原子群を表す。Z₁ならびにZ₂は環状構造となって、上記に示したような縮合ヘテロ環を形成するが、この縮合ヘテロ環には水素原子以外にさまざまな置換基が置換可能である。その例を挙げると、例えば、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、ホルミル基、もしくは置換あるいは無置換のアルキル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～15である。例えば、メチル基、t-ブチル基、シクロヘキシル基などが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～15である。例えば、エチナリル基、1-ブロビニル基などが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～15である。例えば、フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、ビフェニリル基、ピレニル基などが挙げられる。)、

【0012】ヘテロ環基(好ましくは5または6員環であり、他の環と縮合しても良い。ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子が挙げられる。好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～15である。例えば、ビリジル基、ピペリジル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、テトラヒドロフリル基、カルバゾリル基、チエニル基などが挙げられる。)、1～3級アミノ基(アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、ジアルキルアミノ基、ジアリールアミノ基、アルキルアリールアミノ基、ヘテロ環アミノ基、ビスヘテロ環アミノ基など。好ましくは3級アミノ基であり、炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～16である。例えばジメチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、フェニルナフチルアミノ基などが挙げられる。)、イミノ基(-CR₁₁=

NR₁₂または-N=CR₁₃R₁₄で表される基。ここでR₁₁～R₁₄は水素原子、アルキル基、アリール基、ヘテロ環基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、1～3級アミノ基から選ばれる基である。好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～15である。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～15である。例えば、メトキシ基、エトキシ基、シクロヘキシルオキシ基などが挙げられる。)、

【0013】アリールオキシ基(ヘテロアリールオキシ基も含む。好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～15である。例えば、フェノキシ基、1-ナフトキシ基、4-フェニルフェノキシ基などが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～15である。例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、シクロヘキシルチオ基などが挙げられる。)、アリールチオ基(ヘテロアリールチオ基も含む。好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～15である。例えば、フェニルチオ基、トリルチオ基などが挙げられる。)、カルボンアミド基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～15である。例えば、アセトアミド基、ベンゾイルアミド基、N-メチルベンゾイルアミド基などが挙げられる。)、スルホンアミド基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～15である。例えば、メタンスルホンアミド基、ベンゼンスルホンアミド基、p-トルエンスルホンアミド基などが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～15である。例えば、無置換のカルバモイル基、メチルカルバモイル基、ジメチルカルバモイル基、フェニルカルバモイル基、ジフェニルカルバモイル基、ジオクチルカルバモイル基などが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～15である。例えば、無置換のスルファモイル基、メチルスルファモイル基、ジメチルスルファモイル基、フェニルスルファモイル基、ジフェニルスルファモイル基、ジオクチルスルファモイル基などが挙げられる。)、アルキルカルボニル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～15である。)、アリールカルボニル基(ヘテロアリールカルボニル基も含む。好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～15である。例えば、ベンゾイル基、ナフトイル基などが挙げられる。)、アルキルスルホニル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～15である。例えば、メタンスルホニル基、エタンスルホニル基などが挙げられる。)、アリールスルホニル基(ヘテロアリールスルホニル基も含む。好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～15である。例えば、ベンゼンスルホニル基、p-トルエンスルホニル基、1-ナフタレンスルホニル基などが挙げられる。)、アルコキカルボニル基

(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~15である。例えば、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、ブロキシカルボニル基などが挙げられる。)、アリールオキシカルボニル基(ヘテロアリールオキシカルボニル基も含む。好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~15である。例えばフェノキシカルボニル基、1-ナフトキシカルボニル基などが挙げられる。)、アルキルカルボニルオキシ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~15である。例えば、アセトキシ基、プロピオニルオキシ基、ブチロイルオキシ基などが挙げられる。)、アリールカルボニルオキシ基(ヘテロアリールカルボニルオキシ基も含む。好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~15である。例えばベンゾイルオキシ基、1-ナフトイルオキシ基などが挙げられる。)、ウレタン基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~15である。例えば、メトキシカルボンアミド基、フェノキシカルボンアミド基、メチルアミノカルボンアミド基などが挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~15である。例えば、メチルアミノカルボンアミド基、ジメチルアミノカルボンアミド基、ジフェニルアミノカルボンアミド基などが挙げられる。)、炭酸エステル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~15である。例えば、メトキシカルボニルオキシ基、フェノキシカルボニルオキシ基などが挙げられる。)などである。

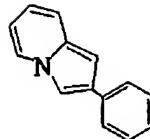
【0015】さらに、一般式(1)で表されるヘテロ環化合物は、その構造を繰り返し単位の1部に有する、高分子化合物を形成してもよい。この場合、Z₁、Z₂の置換基中にエチレン性不飽和結合などの重合性基、もしくは縮重合を起こすようなカルボキシル基やアミノ基、エステル基といった重合性基を含有し、その基が重合することによりポリマーを形成してもよいじ、一般式(1)で表されるヘテロ環化合物の前駆体が一般式(1)のヘテロ環骨格を形成しつつポリマーを形成してもよい。一般式(1)で表されるヘテロ環化合物は、低分子・高分子いずれの場合であっても、最終的に機能を発現する構造となる化合物をそのまま使用することも可能であるし、その前駆体を有機電界発光素子に使用し、素子を構成した後、あるいはその途中で、物理的あるいは化学的な後処理によって最終的な構造に誘導してもよい。低分子化合物として使用する場合、その分子量として好ましくは200~5000、好ましくは300~2000の範囲である。高分子化合物として使用する場合、分子量(M_w)として好ましくは2000~1000000、好ましくは5000~100000の範囲である。

【0016】一般式(1)で表されるヘテロ環化合物は、公知の方法で合成可能である。以下に具体的な化合物とその一部について合成方法を開示する。この具体例によって、本発明はもちろん限定されるものではない。

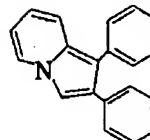
【0017】

【化3】

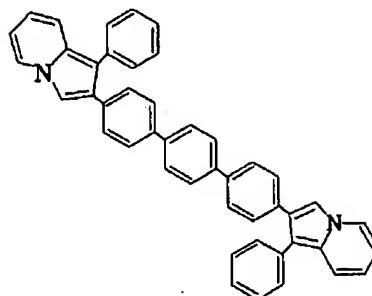
HT-1



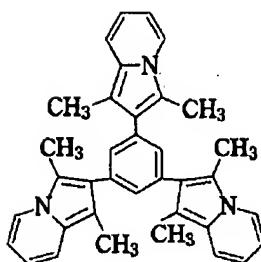
HT-2



HT-3



HT-4



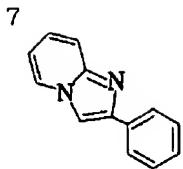
【0018】

【化4】

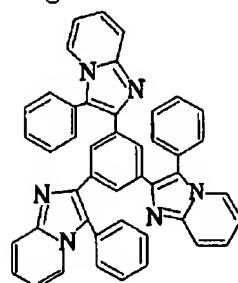
(5)

特開2001-357977

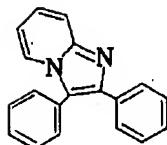
HT-5



HT-9

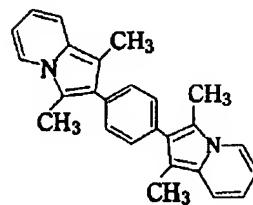


HT-6

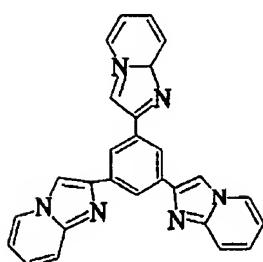


10

HT-10

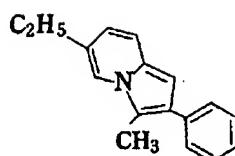


HT-7

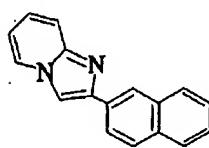


20

HT-11



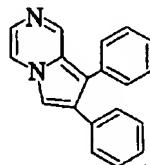
HT-8



【0019】
【化5】

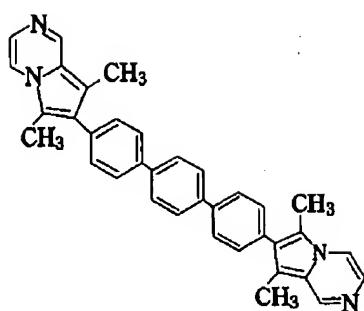
30

HT-12

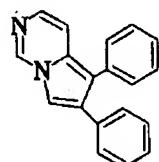


【0020】
【化6】

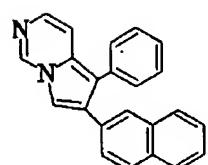
HT-13



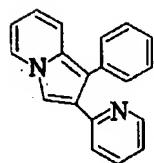
HT-14



HT-15



HT-16



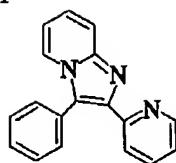
【0021】
【化7】

(7)

特開2001-357977

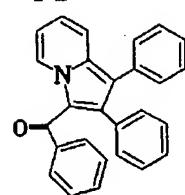
HT-17

11

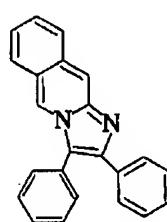


* HT-21

12

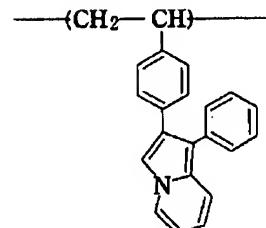


HT-18

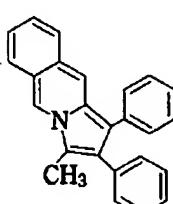


HT-22

10

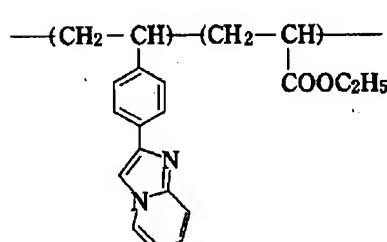


HT-19

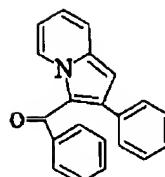


HT-23

20

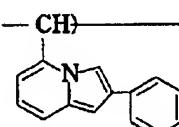


HT-20



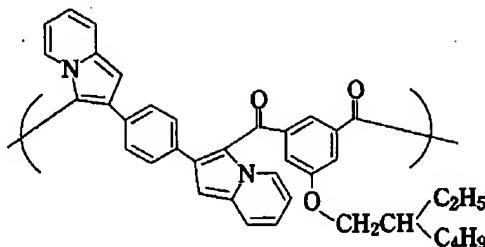
HT-24

30

【0022】
【化8】【0023】
【化9】

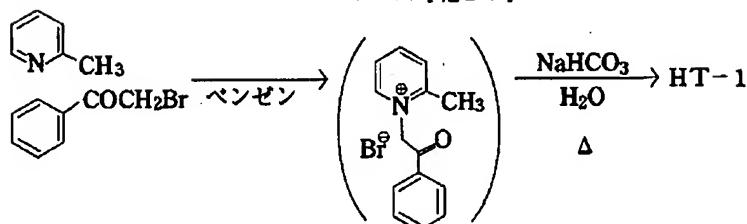
HT-25

*



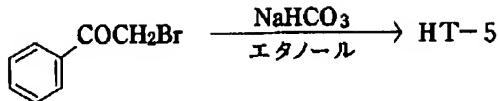
【0024】

※ ※ 【化10】



【0025】

★50★【化11】



【0026】(化合物HT-1の合成)容積300mlの三ツ口フラスコにα-ピコリン10.8g(115mmol)、ベンゼン20mlを仕込み、攪拌下還流させる。ここにフェナシルブロマイド23.8g(117mmol)をベンゼン50mlに溶解した溶液を滴下する。滴下終了後、溶液が白濁し結晶の析出が始まると、そのままさらに4時間加熱還流を続ける。冷却後、析出した結晶を沪別、乾燥する。この結晶を容積2リットルの三ツ口フラスコに仕込み、ここに水300mlを加えて激しく攪拌しながら、内温を80°Cまで上昇させる。ここに炭酸水素ナトリウム84g(1.0mol)を徐々に加えると、激しく発泡しながら溶液の色が黄変する。しばらくすると結晶が析出し始めるので、そのまま30分間攪拌を続ける。冷却後、結晶を沪別し、水洗した後、この粗結晶をアセトニトリル／水の混合溶媒から再結晶して、化合物HT-1の結晶14gを得た。

【0027】(化合物HT-5の合成)容積2リットルのナス型フラスコに2-アミノピリジン58g(0.6mol)、フェナシルブロマイド100g(0.5mol)、炭酸水素ナトリウム84g(1.0mol)、エタノール600mlを仕込み、室温で2時間攪拌する。ついで2時間加熱還流させる。放冷後、冷水3リットルに注ぎ、析出した結晶を沪別する。この粗結晶を冷水で洗浄後、60mol%のエタノールから再結晶して化合物HT-5の結晶80gを得た。

【0028】次に、本発明で用いるオルトメタル化金属錯体について説明する。オルトメタル化金属錯体とは、例えば「有機金属化学—基礎と応用ー」p150, 232裳華房社 山本明夫著 1982年発行、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」p71-p77, p135-p146 Springer-Verlag社 H.Yersin著 1987年発行等に記載されている化合物群の総称である。金属錯体の中心金属としては、遷移金属であればいずれのものも使用可能であるが、本発明では、中でも特にロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウム、パラジウム等を好ましく用いることができる。この中で特に好ましいものはイリジウムである。

【0029】オルトメタル化金属錯体の金属の価数は特に限定しないが、イリジウムを用いる場合には3価が好ましい。オルトメタル化金属錯体の配位子は、オルトメタル化金属錯体を形成し得る物であれば特に問わないが、例えば、アリール基置換含窒素ヘテロ環誘導体(アリール基の置換位置は含窒素ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上であり、アリール基としては例えばフェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、ビレニル基などが挙げられ、含窒素ヘテロ環としては、例えば、ピリジン、ピリ

ミジン、ピラジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、フタラジン、キナゾリン、ナフトリジン、シンノリン、ペリミジン、フェナントロリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、チアジアゾール、ベンズイミダゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、フェナントリジンなどが挙げられる)、ヘテロアリール基置換含窒素ヘテロ環誘導体(ヘテロアリール基の置換位置は含窒素ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上であり、ヘテロアリール基としては例えば前記の含窒素ヘテロ環誘導体を含有する基、チオフェニル基、フリル基などが挙げられる)、7, 8-ベンゾキノリン誘導体、ホスフィノアリール誘導体、ホスフィノヘテロアリール誘導体、ホスフィノキシアリール誘導体、ホスフィノキシヘテロアリール誘導体、アミノメチルアリール誘導体、アミノメチルヘテロアリール誘導体等が挙げられる。アリール基置換含窒素芳香族ヘテロ環誘導体、ヘテロアリール基置換含窒素芳香族ヘテロ環誘導体、7, 8-ベンゾキノリン誘導体が好ましく、フェニルピリジン誘導体、チオフェニルピリジン誘導体、7, 8-ベンゾキノリン誘導体がさらに好ましく、チオフェニルピリジン誘導体、7, 8-ベンゾキノリン誘導体が特に好ましい。

【0030】本発明の化合物は、オルトメタル化金属錯体を形成するに必要な配位子以外に、他の配位子を有していても良い。他の配位子としては種々の公知の配位子が有るが、例えば、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」Springer-Verlag社 H.Yersin著 1987年発行、「有機金属化学—基礎と応用ー」裳華房社 山本明夫著 1982年発行等に記載の配位子が挙げられ、好ましくは、ハロゲン配位子(好ましくは塩素配位子)、含窒素ヘテロ環配位子(例えばビピリジル、フェナントロリンなど)、ジケトン配位子であり、より好ましくは塩素配位子、ビピリジル配位子である。

【0031】本発明のオルトメタル化金属錯体が有する配位子の種類は1種類でも良いし、複数の種類があっても良い。錯体中の配位子の数は、好ましくは1~3種類であり、特に好ましくは1, 2種類であり、さらに好ましくは1種類である。

【0032】本発明のオルトメタル化金属錯体の炭素数は、好ましくは5~100、より好ましくは10~80、さらに好ましくは14~50である。

【0033】本発明のオルトメタル化金属錯体の好ましい形態は、下記一般式(2)で表される部分構造を有する化合物またはその互変異性体、一般式(3)で表される部分構造を有する化合物またはその互変異性体、一般式(4)で表される部分構造を有する化合物またはその互変異性体である。その中でも特に、一般式(2)で表される部分構造を有する化合物またはその互変異性体、もしくは一般式(3)で表される部分構造を有する化合

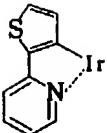
15

物またはその互変異性体が好ましい。

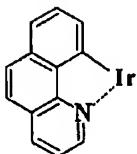
【0034】

【化12】

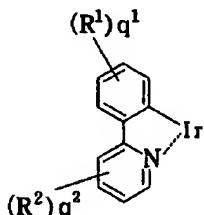
一般式(2)



一般式(3)



一般式(4)



【0035】一般式(2)で表される部分構造を有する化合物またはその互変異性体は、化合物中にイリジウム原子を一つ有しても良いし、また、2つ以上有するいわゆる複核錯体であっても良い。他の金属原子を同時に含有していても良い。一般式(3)、一般式(4)で表される部分構造を有する化合物またはその互変異性体も同様である。

【0036】一般式(4)のR¹、R²は置換基を表す。q¹、q²は0～4の整数を表し、かつ、q¹+q²は1以上である。q¹、q²が2以上の場合、複数個のR¹、R²はそれぞれ同一または互いに異なっても良い。

【0037】R¹、R²としては、例えば、アルキル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメチル、エチル、isopropyl、tert-butyl、n-octyl、n-decyl、n-heptyl、シクロプロピル、シクロペニチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテンイル、3-ベンテニルなどが挙げられる。)、アルキ

16

ニル基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばプロパルギル、3-ベンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチル、アントラニルなどが挙げられる。)、アミノ基(好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～10であり、例えば

10 アミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリールオキシ基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。)、

20 【0038】ヘテロアリールオキシ基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばピリジルオキシ、ピラジルオキシ、ピリミジルオキシ、キノリルオキシなどが挙げられる。)、アシリル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニル基(好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシリルオキシ基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシリルアミノ基(好ましくは炭素数2～3

30 0、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、

40 【0039】スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～10であり、例えばメチルスルホニルアミノ、エチルスルホニルアミノなどが挙げられる。)、アリールスルホニルアミノ基(好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルスルホニルアミノなどが挙げられる。)、

50 【0039】スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～10であり、例えばメチルスルホニルアミノ、エチルスルホニルアミノなどが挙げられる。)、アリールスルホニルアミノ基(好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルスルホニルアミノなどが挙げられる。)、

17

～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロアリールチオ基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばピリジルチオ、2-ベンズイミダゾリルチオ、2-ベンズオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメシル、トシリルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、

【0040】ウレイド基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基

18

(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカブト基、ハログン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリルなどが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3～40、より好ましくは炭素数3～30、特に好ましくは炭素数3～24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。)などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また、R¹基同士、R²基同士、もしくは、R¹基とR²基が結合して縮環構造を形成してもよい。

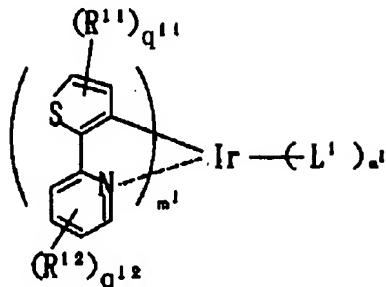
【0041】R¹、R²はアルキル基、アリール基、アルコキシ基、結合して縮環構造を形成する基が好ましく、アルキル基、結合して芳香族縮環構造を形成する基がより好ましい。q¹、q²は0、1、2が好ましく、より好ましくはq¹+q²=1 or 2である。

【0042】本発明のオルトメタル化金属錯体のさらに好ましい形態は、一般式(5)で表される化合物、一般式(6)で表される化合物、一般式(7)で表される化合物である。その中でも特に、一般式(5)で表される化合物、一般式(6)で表される化合物が特に好ましい。

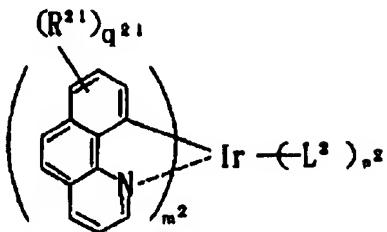
【0043】

【化13】

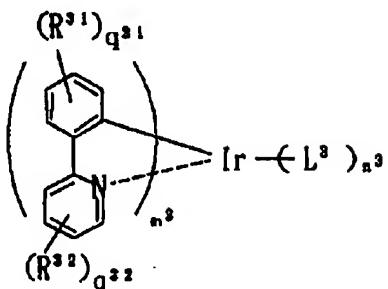
一般式(5)



一般式(6)



一般式(7)



【0044】一般式(5)について説明する。R¹¹, R¹²は置換基を表し、置換基としては前記R¹で説明した置換基が挙げられる。R¹¹, R¹²はアルキル基、アリール基が好ましく、アルキル基がより好ましい。q¹¹は0～2の整数を表し、0, 1が好ましく、0がより好ましい。q¹²は0～4の整数を表し、0, 1が好ましく、0がより好ましい。q¹¹, q¹²が2以上の場合は、複数個のR¹¹, R¹²はそれぞれ同一または互いに異なっても良く、また、連結して縮環を形成しても良い。

【0045】L¹は配位子を表す。配位子としては前記オルトメタル化イリジウム錯体を形成するに必要な配位子、及び、その他の配位子で説明した配位子が挙げられる。L¹はオルトメタル化イリジウム錯体を形成するに必要な配位子及び含窒素ヘテロ環配位子、ジケトン配位子、ハロゲン配位子が好ましく、より好ましくはオルトメタル化イリジウム錯体を形成するに必要な配位子、ビペリジル配位子である。n¹は0～5の整数を表し、0が好ましい。m¹は1, 2または3を表し、好ましくは3である。n¹, m¹の数の組み合わせは、一般式(5)で表される金属錯体が中性錯体となる数の組み合わせが好ましい。

* 【0046】一般式(6)について説明する。R²¹, n², m², L²はそれぞれ前記R¹¹, n¹, m¹, L¹とそれぞれ同義である。q²¹は0～8の整数を表し、0が好ましい。q²¹が2以上の場合は、複数個のR²¹は同一または互いに異なっても良く、また、連結して縮環を形成しても良い。一般式(7)について説明する。R³¹,

30 R³², q³¹, q³², n³, m³, L³はそれぞれ前記R¹, R², q¹, q², n¹, m¹, L¹とそれぞれ同義である。

【0047】本発明のオルトメタル化金属錯体は一般式(2)等の繰り返し単位をひとつ有する、いわゆる低分子化合物であっても良く、また、一般式(2)等の繰り返し単位を複数個有するいわゆる、オリゴマー化合物、ポリマー化合物(平均分子量(Mw:ポリスチレン換算)は好ましくは1000～500000、より好ましくは2000～100000、さらに好ましくは3000～10000である。)であつても良い。本発明の化合物は低分子化合物が好ましい。

40 【0048】次に本発明に用いる化合物例を示すが、本発明はこれに限定されない。

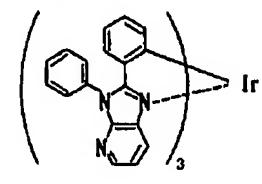
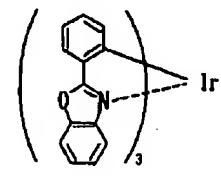
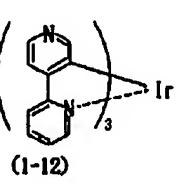
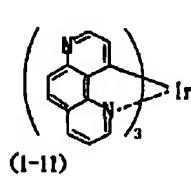
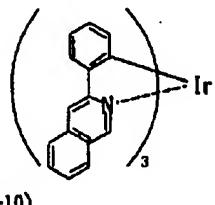
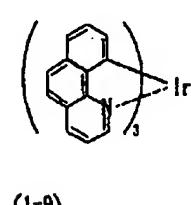
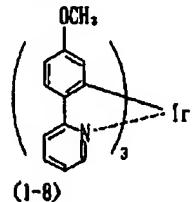
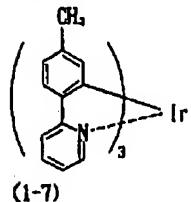
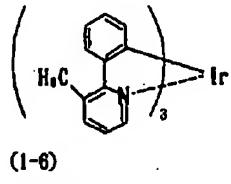
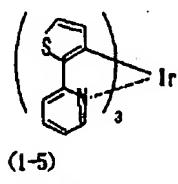
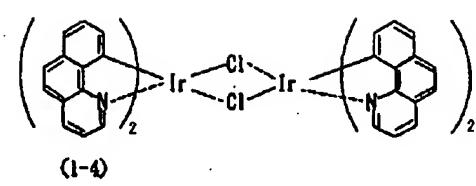
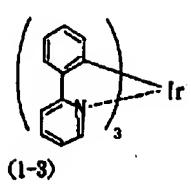
【0049】

【化14】

*

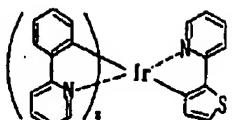
(1-1)

(1-2)

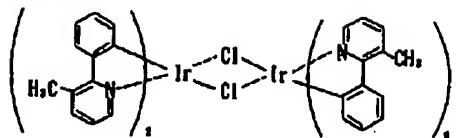


【0050】
【化15】

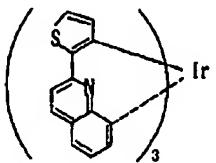
(I-15)



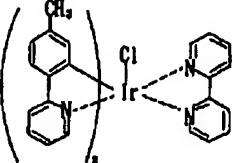
(I-16)



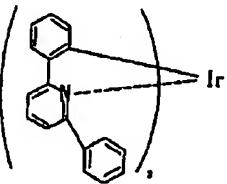
(I-17)



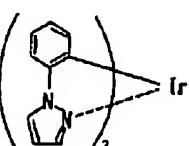
(I-18)



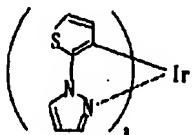
(I-19)



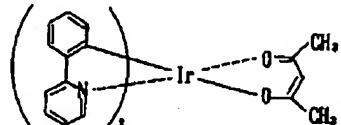
(I-20)



(I-21)



(I-22)



【0051】本発明の化合物はInorg. Chem. 1991年, 30号, 1685頁., 同 1988年, 27号, 3464頁., 同 1994年, 33号, 545頁. Inorg. Chim. Acta 1991年, 181号, 245頁. J. Organomet. Chem. 1987年, 335号, 293頁. J. Am. Chem. Soc. 1985年, 107号, 1431頁. 等、種々の公知の手法で合成することができる。有機発光層中における「縮合ヘテロ環骨格を有する化合物」と「オルトメタル化錯体」との使用割合は、質量比で、好ましくは10000:1~1:

10000、より好ましくは1000:1~1:10である。また、有機発光層中の「縮合ヘテロ環骨格を有する化合物」及び「オルトメタル化錯体」それぞれの使用量は、好ましくは1~100質量%、より好ましくは10~100質量%である。有機発光層の厚みは、好ましくは0.001~10000nm、より好ましくは0.01~1000nmである。その層数は好ましくは1~100、より好ましくは1~10である。次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関する説明する。本発明の化合物を含有する発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、印刷法、LB法、インクジェット法などの方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法が好ましい。

【0052】本発明の発光素子は陽極、陰極の一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。発光素子の構成層やそこに用いる材料などについては、「従来の技術」で引用した各文献が代表的なものであり、本発明で規定した点以外は、これらの記載を参照して通常、実施することができる。

【0053】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ(ITO)等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm~1μmであり、更に好ましくは100nm~500nmである。

【0054】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機

械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2mm以上、好ましくは0.7mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ソルーゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0055】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ボテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K、Cs等）及びそのフッ化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）及びそのフッ化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテリビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極は、上記化合物及び混合物の単層構造だけでなく、上記化合物及び混合物を含む積層構造を取ることもできる。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm～1μmであり、更に好ましくは100nm～1μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω/□以下が好ましい。

【0056】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよい。好ましくは発光層に本発明のアミン化合物を含有するものであるが、他の発光材料を用いることもできる。例えばベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミ

ダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタルイミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリディン化合物、8-キノリノール誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン等のポリマー化合物等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm～1μmであり、更に好ましくは10nm～500nmである。発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンドル法、キャスト法、ディップコート法など）、印刷法、LB法、インクジェット法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

【0057】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリディン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm～1μmであり、更に好ましくは10nm～500nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法やインクジェット法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンドル法、キャスト法、ディップコート法など）が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹

脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0058】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオビランジオキシド誘導体、カルビジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルビラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm～1μmであり、更に好ましくは10nm～500nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法やインクジェット法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンドルコート法、キャスト法、ディップコート法など)などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0059】保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO₂、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂等の金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、C

a F₂等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率

10 0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。保護層の形成方法について特に限定ではなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE(分子線エピタキシ)法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法(高周波励起イオンプレーティング法)、プラズマCVD法、レーザー-CVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、インクジェット法を適用できる。

【0060】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。(実施例1) 25mm×25mm×0.7mmのガラス基板上にITOを150nmの厚さで製膜したもの(東京三容真空(株)製)を透明支持基板とした。この透明支持基板をエッチング、洗浄後、銅フタロシアニンを約10nm蒸着した。次にTPD(N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-N,N'-ジフェニルベンジン)約40nm、および第3層としてAlq(トリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム)約60nmを順に10⁻³～10⁻⁴Paの真空中で、基板温度室温の条件下蒸着した。有機薄膜上にパターニングしたマスク(発光面積が5mm×5mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀=10:1を250nm共蒸着した後、銀300nmを蒸着し、素子101を作製した。素子101のTPD層を約20nmに変更し、TPD層とAlq層の間に表1に示す構成の中間層を新たに設けた以外は、101と全く同じ組成のEL素子102～112を作製した。表1に示すそれぞれのホスト材料：発光材料=10:1の質量比で共蒸着し、その膜厚を20nmとした。東陽テクニカ社製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、また発光波長については浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーパーマー11を用いて測定した。その結果を表2に示す。

40 【0061】
【表1】

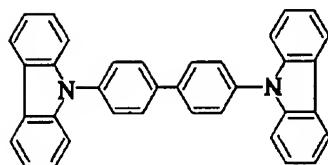
表1

発光素子No.	中間層ホスト材料	中間層発光材料	中間層膜厚(nm)
101(比較例)	なし	なし	-
102(比較例)	CBP	I-1	20
103(比較例)	CBP	I-1	40
104(比較例)	CBP	I-19	20
105(本発明)	HT-7	I-1	20
106(本発明)	HT-7	I-4	20
107(本発明)	HT-7	I-19	20
108(本発明)	HT-13	I-1	20
109(本発明)	HT-13	I-4	20
110(本発明)	HT-13	I-19	20
111(本発明)	HT-9	I-1	20
112(本発明)	HT-9	I-19	20

【0062】

【化16】

CBP



*【0063】

【表2】

*表2

発光素子No.	発光入射波長(nm)	印可電圧12Vでの輝度(cd/m²)	発光の外部量子効率(%)
101(比較例)	524	8500	2.2
102(比較例)	513	36500	9.2
103(比較例)	513	22000	7.8
104(比較例)	523	28000	8.5
105(本発明)	512	38000	10.1
106(本発明)	515	32000	8.9
107(本発明)	522	32500	9.1
108(本発明)	512	37000	9.2
109(本発明)	516	35000	9.2
110(本発明)	519	31000	8.9
111(本発明)	511	41000	10.4
112(本発明)	519	32000	9.1

【0064】また、これらの素子をアルゴンガスで置換したオートクレーブ中に封入し、85°Cの加熱条件下3日間保存した後に、同様の輝度測定・および発光面状観察を行った結果を表3に示す。

【0065】

【表3】

表3

発光素子No.	印可電圧12Vでの輝度(cd/m²)	発光面状
101(比較例)	2500	×
102(比較例)	12000	×
103(比較例)	8800	×
104(比較例)	7600	×
105(本発明)	32000	○
106(本発明)	28000	○
107(本発明)	29000	○
108(本発明)	31000	○
109(本発明)	28500	○
110(本発明)	26500	○
111(本発明)	36000	○
112(本発明)	28500	○

【0066】表2の結果から、オルトメタル化イリジウム錯体を、文献で公知の化合物であるCBPや、本発明の化合物と用いた素子では、オルトメチル化イリジウム錯体を用いない素子に比べて発光輝度も著しく上昇し、外部量子効率も5%以上に向上している（2%台に比べて7%以上）ことがわかる。これに対して、表3の保存後※

※の結果を見てみると、本発明の化合物を用いた素子では、比較試料101～104に比べて輝度の低下も少なく、素子の発光面状も良好で、素子の保存耐久性が大幅に向上していることがわかる。

【0067】(実施例2) 実施例1と同様にエッチング、洗浄したITOガラス基板上に、ポリ(N-ビニルカルバゾール(PVK))40mg、2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール(DNPB)12mg、クマリン-6 10mgを1,2-ジクロロエタン3mlに溶解した溶液をスピンドルコートした。このときの有機層の膜厚は約120nmであった。次いで実施例1と同様に陰極を蒸着し、EL素子201を作製した。素子201に対して、クマリン-6の代わりに表4に示した化合物を添加して用いた以外は、201と全く同じ組成のEL素子202～210を作製した。東陽テクニカ社製ソースメジャユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、また発光波長については浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザPMA-11を用いて測定した。その結果を表5に示す。

【0068】

【表4】

31

32

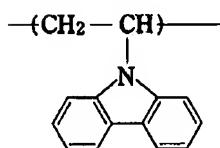
表4

発光素子No.	添加したホスト材料(添加量mg)	添加した発光材料(添加量mg)
201(比較例)	なし	クマリン-6(10mg)
202(比較例)	CBP(20mg)	クマリン-6(10mg)
203(比較例)	CBP(20mg)	1-1(2mg)
204(本発明)	HT-6(20mg)	1-1(2mg)
205(本発明)	HT-6(20mg)	1-4(2mg)
206(本発明)	HT-6(20mg)	1-19(2mg)
207(本発明)	HT-12(20mg)	1-1(2mg)
208(本発明)	HT-12(20mg)	1-4(2mg)
209(本発明)	HT-17(20mg)	1-1(2mg)
210(本発明)	HT-17(20mg)	1-4(2mg)

【0069】

【化17】

PVK

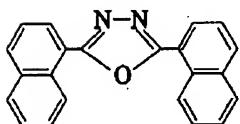


10*【0070】

【表5】

DNPB

20



*

表5

発光素子No.	発光λ _{max} (nm)	印可電圧18Vでの輝度(cd/m ²)	発光の外部量子効率(%)
201(比較例)	527	2750	0.67
202(比較例)	526	2300	0.65
203(比較例)	512	11000	3.1
204(本発明)	511	14500	3.5
205(本発明)	514	13000	3.2
206(本発明)	525	15500	3.8
207(本発明)	511	16000	3.8
208(本発明)	515	13000	3.3
209(本発明)	512	17500	3.7
210(本発明)	514	13500	3.3

【0071】表5の結果から明らかな様に、実施例1と同様に、オルトメタル化イリジウム錯体を、文献で公知の化合物であるCBPや、本発明の化合物と用いた素子では、オルトメタル化錯体を用いない錯体に比べて発光輝度もかなり上昇し、外部量子効率も1%未満台に比べて※

※3%以上に向上していることがわかる。

【0072】

【発明の効果】本発明の有機電界発光素子は、高輝度、高効率発光可能で耐久性に優れる。

フロントページの続き

(72)発明者 伊勢 俊大
神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フィルム株式会社内

(72)発明者 岡田 久
神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フィルム株式会社内
F ターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB11 AB18
CA01 CB01 DA01 DB03 EB00

*

JPO and INPIT are not responsible for any
damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] About a light emitting device, luminous efficiency of this invention is high by especially high brightness, and it relates to the organic electroluminescence devices which are excellent in endurance.

[0002]

[Description of the Prior Art] The researches and developments about various light emitting devices are active, and especially, since an organic electroluminescence (EL) component can obtain luminescence of the high brightness in a low battery, it attracts attention as a promising light emitting device today. For example, the light emitting device which forms an organic thin film by vacuum evaporationo of an organic compound is known (applied physics Letters, 51 volumes, 913 pages, 1987). The light emitting device indicated by this reference is raising the luminescence property sharply compared with the conventional monolayer mold component by carrying out a laminating to an electron hole transportation ingredient (amine compound), using a tris (8-hydroxyquinolinate) aluminum complex (Alq) as an electronic transportation ingredient.

[0003] Although applying an organic EL device to a color display in recent years is examined actively, in order to develop a high performance color display, there are blue, green and red, and the need of raising the property of each light emitting device. As a means of the improvement in a light emitting device property, the green light emitting device using luminescence from an iridium complex (Ir3 (ppy)) is reported (Applied Physics Letters 75, 4(1999)). Although this component has attained 8% of external quantum yields and had exceeded 5% of external quantum yields conventionally called limitation of a component, a problem is in endurance and the amelioration was desired.

[0004] On the other hand, although what has realized high brightness luminescence in an organic light emitting device is a component which is carrying out the laminating of the organic substance with vacuum deposition, component production by the spreading method from viewpoints, such as simplification of a production process, workability, and large-area-izing, is desirable. However, with the component produced by the conventional spreading method, it is inferior to the component produced by the vacuum evaporationo method in respect of luminescence brightness and luminous efficiency, and high brightness and efficient luminescence-ization had become a big technical problem.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] This invention is made in view of the above actual condition, and high brightness and efficient luminescence are possible and it is in offering organic electroluminescence devices excellent in endurance.

[0006]

[Means for Solving the Problem] This technical problem was attained by the following by the light emitting device of a publication.

(1) Organic electroluminescence devices characterized by containing the compound and alt.metal-ized complex which have the condensation heterocycle frame which has a nitrogen atom at the condensation

section in at least one layer of this organic luminous layer or an organic compound layer in the light emitting device in which the organic compound layer which contains an organic luminous layer or an organic luminous layer in inter-electrode [of the pair prepared on the substrate] was formed.

(2) Organic electroluminescence devices given in (1) term characterized by the compound which has the condensation heterocycle frame which has a nitrogen atom in the condensation section being a compound expressed with the following general formula (1).

General formula (1)

[0007]

[Formula 2]



[0008] X expresses a carbon atom or a nitrogen atom among a formula. Z1 and Z2 express the atomic group which can form nitrogen-containing heterocycle independently, respectively.

(3) (1) characterized by an alt.metal-ized complex being an iridium complex, or organic electroluminescence devices given in (2) terms.

(4) Organic electroluminescence devices given in either of the (1) - (3) terms characterized by an organic luminous layer containing a high molecular compound.

[0009]

[Embodiment of the Invention] The heterocycle compound used by this invention is a compound which has the condensation heterocycle frame which has a nitrogen atom in the condensation section. It is the aromatic series heterocycle which has one more or more atoms preferably chosen from N, O, and S atom besides the nitrogen atom of the condensation section as a compound used by this invention, and has a nitrogen atom in [two or more] a skeleton as a whole still more preferably, and is the aromatic series heterocycle which one of the N atoms exists in the condensation section, and has another nitrogen atom preferably especially in the location which is not the further hetero aromatic series endocyclic condensation section. Things desirable as each ring number of the condensed heterocycle are 5 or 6 membered-rings preferably three to 8 membered-ring.

[0010] As a frame of heterocycle used by this invention, indolizine, a pyrrolo imidazole, pyrrolo triazole, a pyrazolo imidazole, pyrazolo triazole, a pyrazolo pyrimidine, pyrazolo triazine, an imidazo imidazole, imidazo pyridazine, imidazopyridine, imidazo pyrazine, a triazolo pyridine, etc. are mentioned, for example, and they are imidazo pyridazine, imidazopyridine, imidazo pyrazine, and a triazolo pyridine preferably.

[0011] In order to form the frame described above, X expresses a carbon atom or a nitrogen atom among a general formula (1). Preferably, X is a carbon atom. Z1 and Z2 express the atomic group which can form nitrogen-containing heterocycle independently, respectively. Although condensation heterocycle as Z1 and Z2 become cyclic structure and shown above is formed, to this condensation heterocycle, various substituents in addition to a hydrogen atom are replaceable. if the example is given -- the alkyl group (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) which is not permuted [for example, a halogen atom (for example, a fluorine atom, a chlorine atom, a bromine atom, an iodine atom), a cyano group, a formyl group, a permutation, or] for example, a methyl group, t-butyl, a cyclohexyl radical, etc. are mentioned -- an alkenyl radical (desirable -- carbon numbers 2-30 -- they are carbon numbers 2-15 more preferably.) for example, a vinyl group, 1-propenyl radical, a 1-butene-2-IRU radical, a cyclohexene-1-IRU radical, etc. are mentioned -- an alkynyl group (desirable -- carbon numbers 2-30 -- they are carbon numbers 2-15 more preferably.) for example, an ethynyl group, 1-propynyl radical, etc. are mentioned -- an aryl group (desirable -- carbon numbers 6-30 -- they are carbon numbers 6-15 more preferably.) For example, a phenyl group, a tolyl group, a xylyl group, a naphthyl group, a biphenylyl radical, a pyrenyl radical, etc. are mentioned. [0012] Heterocycle radical (it is 5 or 6 membered-rings preferably, and you may condense with other rings.) As a hetero atom, a nitrogen atom, an oxygen atom, and a sulfur atom are mentioned, for example. desirable -- carbon

numbers 2-30 -- they are carbon numbers 2-15 more preferably. for example, a pyridyl radical, a piperidyl radical, an oxazolyl radical, an oxadiazolyl radical, a tetrahydro furil radical, a carbazolyl radical, a thienyl group, etc. are mentioned -- the 1-3rd class amino groups (the amino group, an alkylamino radical, an arylamino radical, a dialkylamino radical, the diaryl amino group, an alkyl arylamino radical, heterocycle amino group, bis-heterocycle amino group, etc.) desirable -- the 3rd class amino group -- it is -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-16 more preferably. for example, a dimethylamino radical, a diphenylamino radical, the phenyl naphthyl amino group, etc. are mentioned -- an imino group (radical expressed with -CR11=NR12 or -N=CR 13R14.) R11-R14 are radicals chosen from a hydrogen atom, an alkyl group, an aryl group, a heterocycle radical, an alkoxy group, an aryloxy group, an acyl group, and the 1-3rd class amino group here. desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably -- an alkoxy group (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) For example, a methoxy group, an ethoxy radical, a cyclohexyloxy radical, etc. are mentioned. [0013] Aryloxy group (a heteroaryloxy radical is also included.) desirable -- carbon numbers 6-30 -- they are carbon numbers 6-15 more preferably. for example, a phenoxy group, a 1-naphthoxy radical, 4-phenyl phenoxy group, etc. are mentioned -- an alkylthio group (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, a methylthio radical, an ethyl thio radical, a cyclohexyl thio radical, etc. are mentioned -- an arylthio radical (a hetero arylthio radical is also included.) desirable -- carbon numbers 6-30 -- they are carbon numbers 6-15 more preferably. for example, a phenylthio radical, a tolyl thio radical, etc. are mentioned -- a carvone amide group (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, an acetamide radical, a benzoyl amide group, N-methylbenzoyl amide group, etc. are mentioned -- a sulfonamide radical (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, a methanesulfon amide group, a benzenesulfonamide radical, p-toluenesulfonamide radical, etc. are mentioned -- a carbamoyl group (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, a non-permuted carbamoyl group, a methylcarbamoyl radical, a dimethyl carbamoyl group, a phenylcarbamoyl radical, a diphenyl carbamoyl group, a dioctyl carbamoyl group, etc. are mentioned -- a sulfamoyl group (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, a non-permuted sulfamoyl group, a methyl sulfamoyl group, a dimethyl sulfamoyl group, a phenyl sulfamoyl group, a diphenyl sulfamoyl group, a dioctyl sulfamoyl group, etc. are mentioned -- an alkyl carbonyl group (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.)

[0014] for example, an acetyl group, a propionyl radical, a BUCHIROIRU radical, a lauroyl radical, etc. are mentioned -- an aryl carbonyl group (a heteroaryl carbonyl group is also included.) desirable -- carbon numbers 6-30 -- they are carbon numbers 6-15 more preferably. for example, benzoyl, a naphthoyl radical, etc. are mentioned -- an alkyl sulfonyl group (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, a methane sulfonyl group, an ethane sulfonyl group, etc. are mentioned -- an aryl sulfonyl group (a heteroaryl sulfonyl group is also included.) desirable -- carbon numbers 6-30 -- they are carbon numbers 6-15 more preferably. for example, a benzenesulphonyl radical, a p-toluenesulfonyl group, a 1-naphthalene sulfonyl group, etc. are mentioned -- an alkoxy carbonyl group (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, a methoxycarbonyl group, an ethoxycarbonyl radical, a butoxycarbonyl radical, etc. are mentioned -- an aryloxy carbonyl group (a heteroaryl oxycarbonyl radical is also included.) desirable -- carbon numbers 6-30 -- they are carbon numbers 6-15 more preferably. for example, a phenoxy carbonyl group, a 1-naphthoxy carbonyl group, etc. are mentioned -- an alkylcarbonyloxy radical (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, an acetoxy radical, a propionyloxy radical, a BUCHIROYLOXY radical, etc. are mentioned -- an aryl-carbonyloxy group (heteroaryl carbonyloxy group is also included.) desirable -- carbon numbers 6-30 -- they are carbon numbers 6-15 more preferably. for example, a benzoyloxy radical, 1-naphthoyl oxy-radical, etc. are mentioned -- a urethane group (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, a methoxy carvone amide group, a

phenoxy carvone amide group, a methylamino carvone amide group, etc. are mentioned -- an ureido radical (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, a methylamino carvone amide group, a dimethylamino carvone amide group, a diphenylamino carvone amide group, etc. are mentioned -- a carbonate radical (desirable -- carbon numbers 1-30 -- they are carbon numbers 1-15 more preferably.) for example, a methoxycarbonyloxy radical, a phenoxy carbonyloxy radical, etc. are mentioned. etc. -- it is .

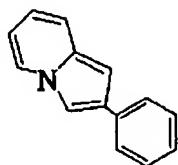
[0015] Furthermore, the heterocycle compound expressed with a general formula (1) may form the high molecular compound which repeats the structure and it has in the one section of a unit. In this case, polymerization nature machines, such as polymerization nature machines, such as an ethylene nature unsaturated bond, or a carboxyl group which starts condensation polymerization, an amino group, and an ester group, are contained in the substituent of Z1 and Z2, when that radical carries out a polymerization, a polymer may be formed, and a polymer may be formed, the precursor of the heterocycle compound expressed with a general formula (1) forming the heterocycle frame of a general formula (1). the heterocycle compound expressed with a general formula (1) -- low-molecular and a macromolecule -- after [which can also use the compound used as the structure which finally discovers a function as it is even if it is which case] carrying out, using the precursor for organic electroluminescence devices and constituting a component -- or -- the -- on the way -- it may come out and you may guide to final structure by physical or chemical after treatment. the case where it is used as a low molecular weight compound -- as the molecular weight -- desirable -- 200-5000 -- it is the range of 300-2000 preferably. the case where it is used as a high molecular compound -- as molecular weight (Mw) -- desirable -- 2000-1 million -- it is the range of 5000-100000 preferably.

[0016] The heterocycle compound expressed with a general formula (1) is compoundable by the well-known approach. A synthetic approach is indicated about a concrete compound and its part below. Of course, this invention is not limited by this example.

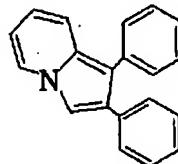
[0017]

[Formula 3]

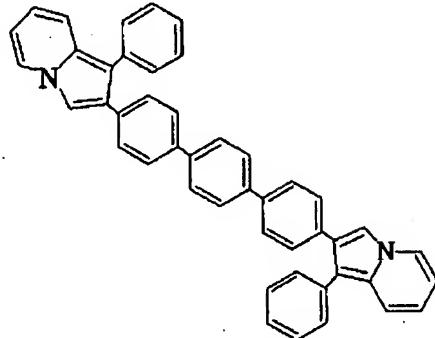
HT-1



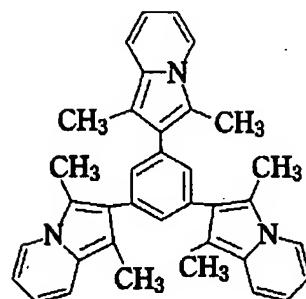
HT-2



HT-3



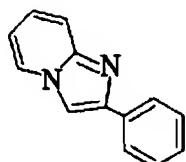
HT-4



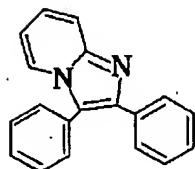
[0018]

[Formula 4]

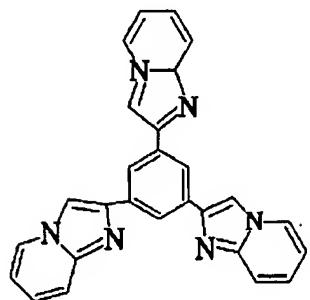
HT-5



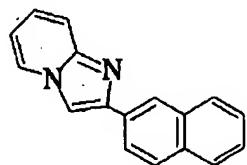
HT-6



HT-7

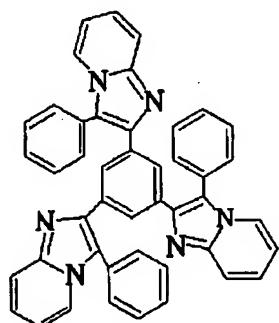


HT-8

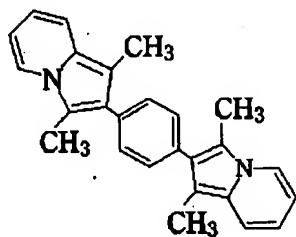


[0019]
[Formula 5]

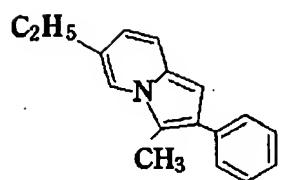
HT-9



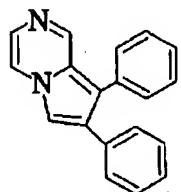
HT-10



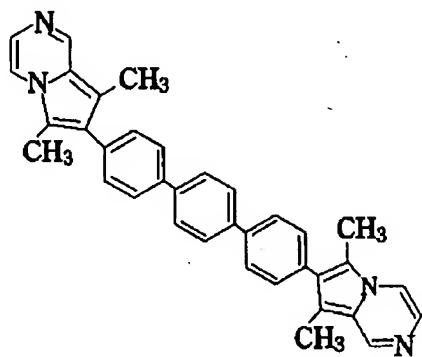
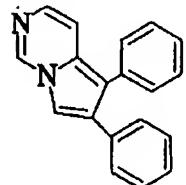
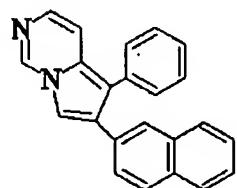
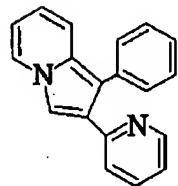
HT-11



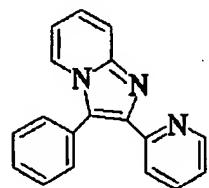
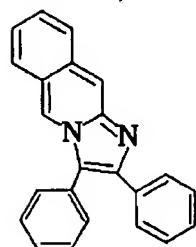
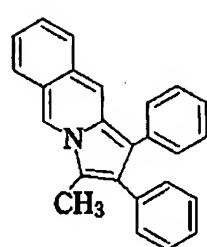
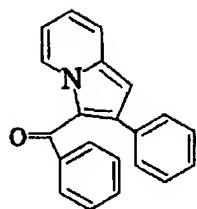
HT-12



[0020]
[Formula 6]

HT-13**HT-14****HT-15****HT-16**

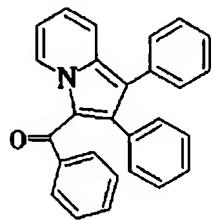
[0021]
[Formula 7]

HT-17**HT-18****HT-19****HT-20**

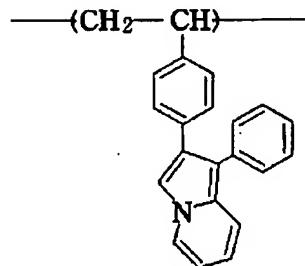
[0022]

[Formula 8]

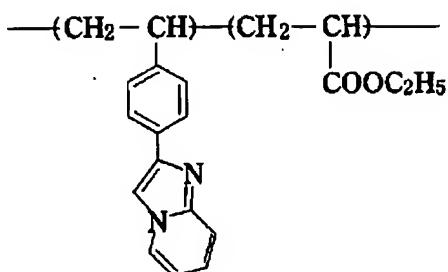
HT-21



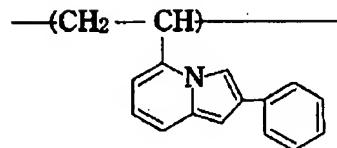
HT-22



HT-23



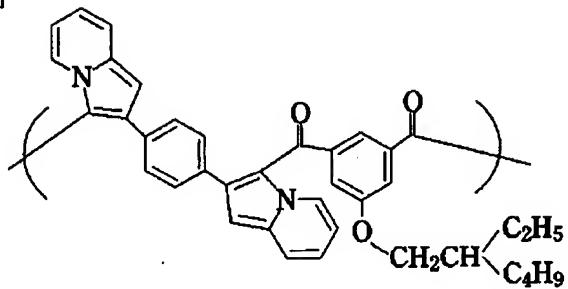
HT-24



[0023]

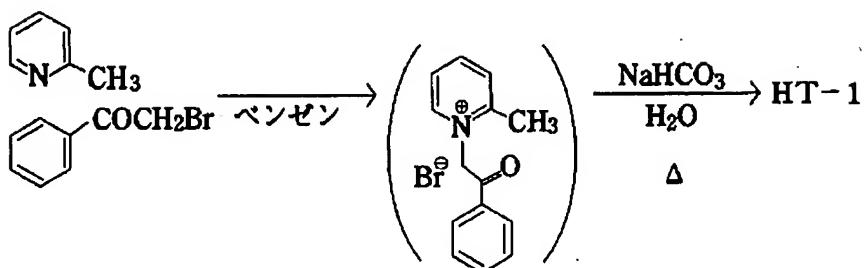
[Formula 9]

HT-25



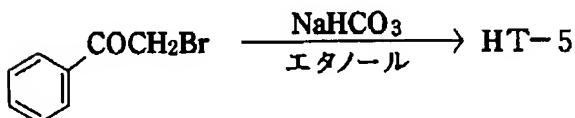
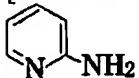
[0024]

[Formula 10]



[0025]

[Formula 11]



[0026] (Composition of compound HT-1) 10.8g [of alpha-picoline] (115mmol) and benzene 20ml is taught to a 3 Thu openings flask with a volume of 300ml, and it is made to flow back under churning. The solution which dissolved phenacyl star's picture 23.8g (117mmol) in benzene .50ml is dropped here. After dropping termination, a solution becomes cloudy and a deposit of a crystal starts. Heating reflux is then continued for further 4 hours. The depositing crystal is dried a ** exception after cooling. This crystal is taught to a 3 Thu openings flask with a volume of 2l., and an internal temperature is raised to 80 degrees C, adding 300ml of water here and agitating violently. If 84g (1.0 mols) of sodium hydrogencarbonates is added here gradually, the color of a solution will yellow foaming violently. After a while, since a crystal begins to deposit, churning is continued for 30 minutes as it is. After cooling, the crystal was carried out the ** exception, after rinsing, this rough crystal was *****ed from the mixed solvent of an acetonitrile/water, and 14g of crystals of compound HT-1 was obtained.

[0027] (Composition of compound HT-5) 2-aminopyridine 58g (0.6 mols), phenacyl star's picture 100g (0.5 mols), 84g [of sodium hydrogencarbonates] (1.0 mols), and ethanol 600ml is taught to an eggplant mold flask with a volume of 2l., and it agitates at a room temperature for 2 hours. Subsequently, heating reflux is carried out for 2 hours. It flows into 3l. of cold water after radiation cooling, and the depositing crystal is carried out a ** exception. This rough crystal was *****ed after washing and from 60-mol % of ethanol with cold water, and 80g of crystals of compound HT-5 was obtained.

[0028] Next, the alt.metal-ized metal complex used by this invention is explained. An alt.metal-ized metal complex is for example, "organic metal chemistry-foundation and application [-]" p150,232 Shokabo Publishing Co., Ltd. Akio Yamamoto work The 1982 issue, "Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds" p71-p77, and p135-p146 Springer-Verlag It is the generic name of the compound group indicated by issue etc. in H.Yersin work 1987. Although anything is usable as a central metal of a metal complex if it is transition metals, especially in this invention, a rhodium, platinum, gold, iridium, a ruthenium, palladium, etc. can be used preferably especially. In this, especially a desirable thing is iridium.

[0029] Although especially the valence of the metal of an alt.metal-ized metal complex is not limited, trivalent is desirable when using iridium. Although the ligand of an alt.metal-ized metal complex will not be asked especially if it is the object which can form an alt.metal-ized metal complex For example, an aryl group permutation nitrogen-containing heterocycle derivative (the permutation location of an aryl group is on the contiguity carbon of a nitrogen-containing heterocycle nitrogen atom) As an aryl group, a phenyl group, a naphthyl group; an anthracenyl group, a pyrenyl radical, etc. are mentioned. As nitrogen-containing heterocycle For example, a pyridine, a pyrimidine, pyrazine, pyridazine, a quinoline, An isoquinoline, quinoxaline, phthalazine, quinazoline, a naphth lysine, Cinnoline, peri

MIJIN, a phenanthroline, a pyrrole, an imidazole, A pyrazole, oxazole, oxadiazole, triazole, thiadiazole, Benzimidazole benzoxazole, a bends thiazole, phenanthridine, etc. are mentioned. Heteroaryl radical permutation nitrogen-containing heterocycle derivative (the permutation location of a heteroaryl radical is on the contiguity carbon of a nitrogen-containing heterocycle nitrogen atom) As a heteroaryl radical, for example, the radical containing the aforementioned nitrogen-containing heterocycle derivative, 7, 8-benzoquinoline derivative with which a thiophenyl radical, a furil radical, etc. are mentioned, A phosphino aryl derivative, a phosphino heteroaryl derivative, a phosphino KISHIA reel derivative, a phosphino KISHIHETEROARIRU derivative, an aminomethyl aryl derivative, an aminomethyl heteroaryl derivative, etc. are mentioned. Aryl group permutation nitrogen-containing aromatic series heterocycle derivative, heteroaryl radical permutation nitrogen-containing aromatic series heterocycle derivative, 7, and 8-benzoquinoline derivative is desirable, phenyl pyridine derivative, thiophenyl pyridine derivative, 7, and 8-benzoquinoline derivative is still more desirable, and especially thiophenyl pyridine derivative, 7, and 8-benzoquinoline derivative is desirable.

[0030] The compound of this invention may have other ligands in addition to the ligand required to form an alt.metal-ized metal complex. Although there are various well-known ligands as other ligands For example, "Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds" Springer-Verlag H.Yersin work It will publish in 1987. "Organic metal chemistry-foundation and application [-]" Shokabo Publishing Co., Ltd. Akio Yamamoto work The ligand of a publication will be mentioned to issue etc. in 1982. Preferably It is a halogen ligand (preferably chlorine ligand), nitrogen-containing heterocycle ligands (for example, a bipyridyl, a phenanthroline, etc.), and a diketone ligand, and they are a chlorine ligand and a bipyridyl ligand more preferably.

[0031] There ***** one class of ligand which the alt.metal-ized metal complex of this invention has, and it may have two or more classes. The number of the ligands in a complex is 1-3 preferably, is 1 or 2 kinds especially preferably, and is one kind still more preferably.

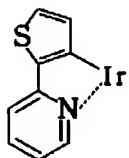
[0032] the carbon number of the alt.metal-ized metal complex of this invention -- desirable -- 5-100 -- more -- desirable -- 10-80 -- it is 14-50 still more preferably.

[0033] The desirable gestalt of the alt.metal-ized metal complex of this invention is the compound which has the substructure expressed with the following general formula (2) or its tautomer, the compound which has the substructure expressed with a general formula (3) or its tautomer, the compound which has the substructure expressed with a general formula (4), or its tautomer. The compound which has the substructure expressed with a general formula (2) also especially in it, its tautomer, the compound which has the substructure expressed with a general formula (3), or its tautomer is desirable.

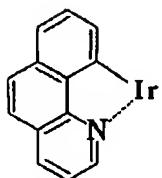
[0034]

[Formula 12]

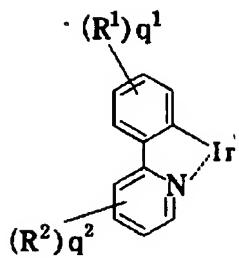
一般式 (2)



一般式 (3)



一般式 (4)



[0035] The compound which has the substructure expressed with a general formula (2), or its tautomer may be the so-called dinuclear complex which may have one iridium atom in a compound, and it has two or more. Other metal atoms may be contained in coincidence. The same is said of the compound which has the substructure expressed with a general formula (3) and a general formula (4), or its tautomer.

[0036] R1 and R2 of a general formula (4) express a substituent. q1 and q2 express the integer of 0-4, and q1+q2 are one or more. When q1 and q2 are two or more, two or more R1 and R2 may differ from each other identically or mutually, respectively.

[0037] as R1 and R2 -- an alkyl group (they are carbon numbers 1-10 especially preferably desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 --) for example, methyl, ethyl, isopropyl, tert-butyl, n-octyl, n-DESHIRU, n-hexadecyl, cyclo propyl, cyclopentyl, cyclohexyl, etc. are mentioned. an alkenyl radical (especially, it is carbon numbers 2-10 preferably, for example, vinyl, an allyl compound, 2-butenyl, 3-pentenyl, etc. are mentioned. desirable -- carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 2-20 --) an alkynyl group (they are carbon numbers 2-10 especially preferably desirable -- carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 2-20 --) for example, propargyl, 3-cutting-pliers nil, etc. are mentioned. an aryl group (especially, it is carbon numbers 6-12 preferably, for example, phenyl, p-methylphenyl, naphthyl, anthranil, etc. are mentioned. desirable -- carbon numbers 6-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 6-20 --) the amino group (they are carbon numbers 0-10 especially preferably desirable -- carbon numbers 0-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 0-20 --) for example, amino, methylamino, dimethylamino, diethylamino, dibenzylamino, diphenylamino, ditolylamino, etc. are mentioned. an alkoxy group (especially, it is carbon numbers 1-10

preferably, for example, methoxy, ethoxy ** butoxy, 2-ECHIRUHEKI siloxy, etc. are mentioned. desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 --) an aryloxy group (desirable -- carbon numbers 6-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 6-20 -- especially, it is carbon numbers 6-12 preferably, for example, phenoxy, 1-naphthoxy, 2-naphthoxy, etc. are mentioned.) and [0038] a heteroaryloxy radical (they are carbon numbers 1-12 especially preferably desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 --) for example, pyridyloxy, pyrazyl oxy-** pyrimidyl oxy-** KINORIRUOKISHI, etc. are mentioned. an acyl group (especially, it is carbon numbers 1-12 preferably, for example, acetyl, benzoyl, the formyl, pivaloyl, etc. are mentioned. desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 --) an alkoxy carbonyl group (they are carbon numbers 2-12 especially preferably desirable -- carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 2-20 --) for example, methoxycarbonyl, ethoxycarbonyl, etc. are mentioned. an aryloxy carbonyl group (especially, it is carbon numbers 7-12 preferably, for example, phenoxy carbonyl etc. is mentioned. desirable -- carbon numbers 7-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 7-20 --) an acyloxy radical (they are carbon numbers 2-10 especially preferably desirable -- carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 2-20 --) for example, acetoxy, benzoyloxy one, etc. are mentioned. the acylamino radical (especially, it is carbon numbers 2-10 preferably, for example, acetylamino, benzoylamino, etc. are mentioned. desirable -- carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 2-20 --) an alkoxy carbonylamino radical (they are carbon numbers 2-12 especially preferably desirable -- carbon numbers 2-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 2-20 --) for example, methoxycarbonylamino etc. is mentioned. an aryloxycarbonylamine radical (especially, it is carbon numbers 7-12 preferably, for example, phenoxy carbonylamino etc. is mentioned. desirable -- carbon numbers 7-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 7-20 --) [0039] a sulfonylamino radical (they are carbon numbers 1-12 especially preferably desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 --) for example, methanesulfonylamino, benzenesulphonyl amino, etc. are mentioned. a sulfamoyl group (especially, it is carbon numbers 0-12 preferably, for example, sulfamoyl, methyl sulfamoyl, dimethyl sulfamoyl, phenyl sulfamoyl, etc. are mentioned. desirable -- carbon numbers 0-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 0-20 --) a carbamoyl group (they are carbon numbers 1-12 especially preferably desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 --) for example, carbamoyl, methylcarbamoyl, diethylcarbamoyl, phenylcarbamoyl, etc. are mentioned. an alkylthio group (especially, it is carbon numbers 1-12 preferably, for example, a methylthio, ethyl thio, etc. are mentioned. desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 --) an arylthio radical (they are carbon numbers 6-12 especially preferably desirable -- carbon numbers 6-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 6-20 --) for example, phenylthio etc. is mentioned. a hetero arylthio radical (especially, it is carbon numbers 1-12 preferably, for example, pyridyl thio, 2-bends IMIZORIRUCHIO, 2-bends oxazolyl thio, 2-bends thiazolyl thio, etc. are mentioned. desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 --) a sulfonyl group (they are carbon numbers 1-12 especially preferably desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 --) for example, mesyl, tosyl, etc. are mentioned. a sulfinyl group (especially, it is carbon numbers 1-12 preferably, for example, methane sulfinyl, benzene sulfinyl, etc. are mentioned. desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 --) [0040] an ureido radical (desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 -- especially, it is carbon numbers 1-12 preferably, for example, ureido, methyl ureido, phenyl ureido, etc. are mentioned.) and a phosphoric-acid amide group They are carbon numbers 1-12 especially preferably. desirable -- carbon numbers 1-30 -- more -- desirable -- carbon numbers 1-20 -- for example, a diethyl phosphoric-acid amide, a phenyl phosphoric-acid amide, etc. are mentioned. a hydroxy group, a sulfhydryl group, and a halogen atom (for example, a fluorine atom --) A chlorine atom, a bromine atom, an iodine atom, a cyano group, a sulfonic group, a carboxyl group, a nitro group, a hydroxamic acid radical, a SURUFINO radical, a hydrazino radical, an imino group, and a heterocycle radical (they are carbon numbers 1-12 more preferably desirable -- carbon numbers 1-30 -- as a hetero atom) for example, a nitrogen atom, an oxygen atom, and a sulfur atom -- imidazolyl, pyridyl, quinolyl, a furil, thieryl, piperidyl, morpholino, bends oxazolyl, benzimidazolyl, bends thiazolyl, etc. are specifically

mentioned. a silyl radical (desirable -- carbon numbers 3-40 -- more -- desirable -- carbon numbers 3-30 -- especially, it is carbon numbers 3-24 preferably, for example, trimethylsilyl, triphenyl silyl, etc. are mentioned.) etc. is mentioned. These substituents may be permuted further. Moreover, R one sets, R two sets or, R1 set, and R2 set may join together, and condensed ring structure may be formed.

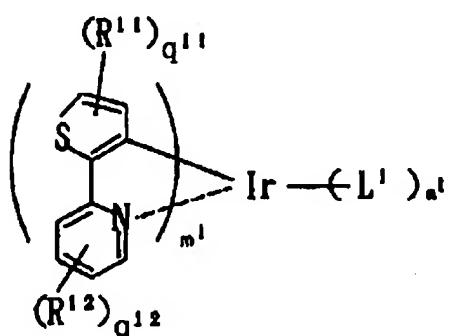
[0041] R1 and R2 have an alkyl group, an aryl group, an alkoxy group, and the desirable radical that forms condensed ring structure unitedly, and an alkyl group and its radical which forms aromatic series condensed ring structure unitedly are more desirable. As for q1 and q2, 0, 1, and 2 are desirable, and it is $q_1+q_2=1$ or 2 more preferably.

[0042] The still more desirable gestalten of the alt.metal-ized metal complex of this invention are the compound expressed with a general formula (5), the compound expressed with a general formula (6), and a compound expressed with a general formula (7). The compound expressed with a general formula (5) also especially in it and especially the compound expressed with a general formula (6) are desirable.

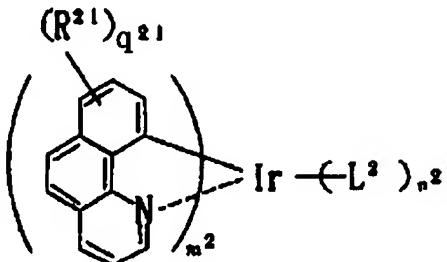
[0043]

[Formula 13]

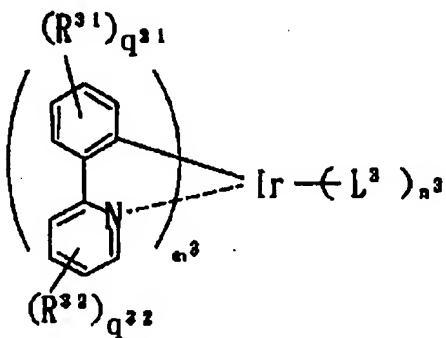
一般式(5)



一般式(6)



一般式(7)



[0044] A general formula (5) is explained. R11 and R12 express a substituent and the substituent explained by said R1 as a substituent is mentioned. R11 and R12 have an alkyl group and a desirable aryl group, and its an alkyl group is more desirable. q11 expresses the integer of 0-2, 0 and 1 are desirable, and 0 is more desirable. q12 expresses the integer of 0-4, 0 and 1 are desirable, and 0 is more desirable. When q11 and q12 are two or more, two or more R11 and R12 may differ from each other identically or mutually, respectively, and may be connected, and they may form a condensed ring.

[0045] L1 expresses a ligand. A ligand required to form said alt.metal-ized iridium complex as a ligand and the ligand explained by other ligands are mentioned. L1 is the ligand which a ligand and a nitrogen-containing heterocycle ligand required to form an alt.metal-ized iridium complex, a diketone ligand, and a halogen ligand are desirable, and needs them to form an alt.metal-ized iridium complex more preferably, and a bipyridyl ligand. n1 expresses the integer of 0-5, and 0 is desirable. m1 expresses 1, 2,

or 3, and is 3 preferably. The combination of the number of n1 and m1 has a number of desirable combination with which the metal complex expressed with a general formula (5) turns into a neutral complex.

[0046] A general formula (6) is explained. R21, n2, m2, and L2 are synonymous with said R11, n1, m1, and L1 respectively. q21 expresses the integer of 0-8, and 0 is desirable. When q21 is two or more, two or more R21 may differ identically or mutually, and may be connected, and may form a condensed ring. A general formula (7) is explained. R31, R32, q31, q32, n3, m3, and L3 are synonymous with said R1, R2, q1, q2, n1, m1, and L1 respectively.

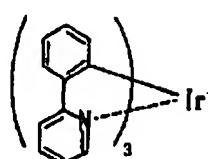
[0047] the alt.metal-ized metal complex of this invention may be the so-called low molecular weight compound which has one repeat units, such as a general formula (2), and may be the so-called oligomer compound and polymer compound (the mean molecular weight (Mw: polystyrene conversion) -- desirable -- 1000-5 million -- more -- desirable -- 2000-1 million -- it is 3000-100000 still more preferably.) which have two or more repeat units, such as a general formula (2). The compound of this invention has a desirable low molecular weight compound.

[0048] Next, although the example of a compound used for this invention is shown, this invention is not limited to this.

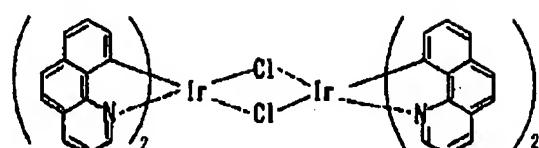
[0049]

[Formula 14]

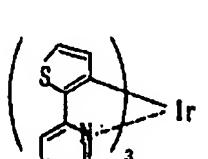
(I-1)



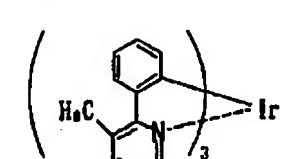
(I-2)



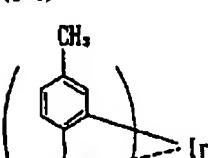
(I-3)



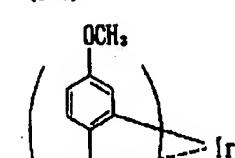
(I-4)



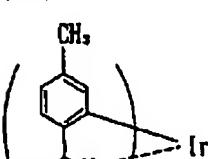
(I-5)



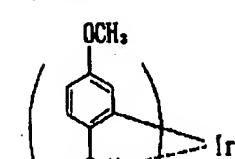
(I-6)



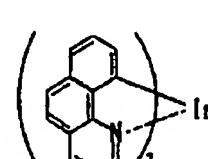
(I-7)



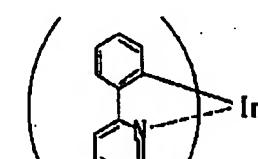
(I-8)



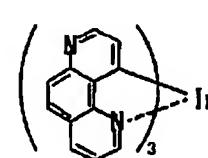
(I-9)



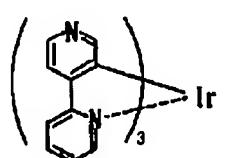
(I-10)



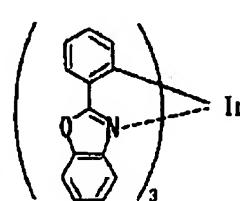
(I-11)



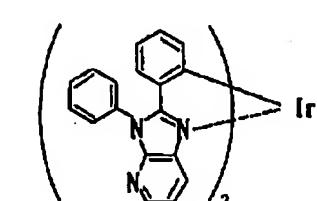
(I-12)



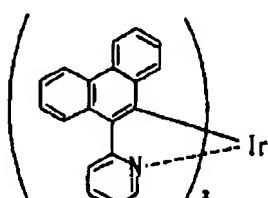
(I-13)



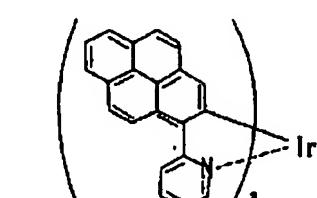
(I-14)



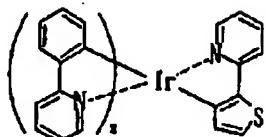
(I-15)



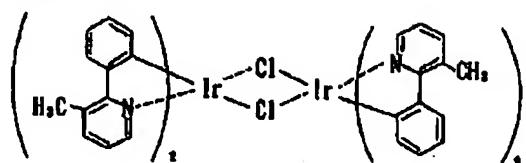
(I-16)



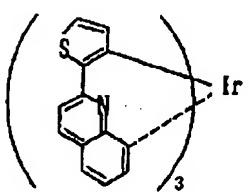
[0050]

[Formula 15]
(I-15)

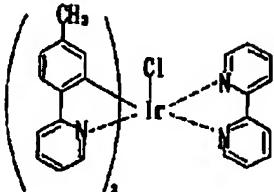
(I-16)



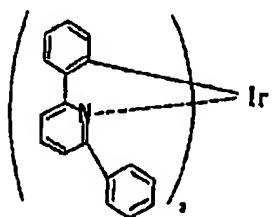
(I-17)



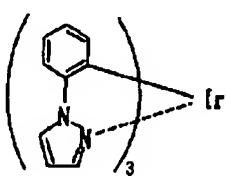
(I-18)



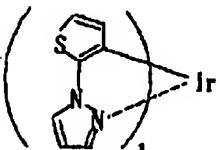
(I-19)



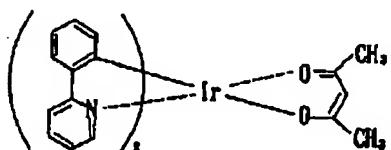
(I-20)



(I-21)



(I-22)



[0051] The compound of this invention Inorg.Chem. 1991, No. 30, 1685page., and ** 1988, No. 27,

3464page., and ** 1994, No. 33, 545 page .Inorg.Chim.Acta 1991, No. 181, 245 page .J.Organomet.Chem. 1987, No. 335, 293 page .J.Am.Chem.Soc. 1985, No. 107, 1431page., etc., It is compoundable by various well-known technique. the operating rate of "the compound which has a condensation heterocycle frame" and the "alt.metal-ized complex" in an organic luminous layer -- a mass ratio -- it is -- desirable -- 10000:1 to 1:10000 -- it is 1000:1 - 1:10 more preferably. moreover, "the compound which has a terrorism ring frame to condensation" in an organic luminous layer and an "alt.methylation complex" -- each amount used -- desirable -- 1 - 100 mass % -- it is 10 - 100 mass % more preferably. 0.001-1000nm of thickness of an organic luminous layer is 0.01-1000nm more preferably. the number of layers -- desirable -- 1-100 -- it is 1-10 more preferably. Next, the light emitting device containing the compound of this invention is explained. although especially the formation approach of the organic layer of the light emitting device containing the compound of this invention is not what is limited -- resistance heating vacuum evaporationo, an electron beam, sputtering, a molecule laminated layers method, a coating method, print processes, and LB -- approaches, such as law and the ink jet method, are used and resistance heating vacuum evaporationo and a coating method are desirable in respect of a property and manufacture.

[0052] The light emitting device of this invention is a component in which two or more organic compound thin films which contain a luminous layer or a luminous layer in inter-electrode [of the pair of an anode plate and cathode] were formed, may have a hole injection layer besides a luminous layer, an electron hole transportation layer, an electronic injection layer, an electron transport layer, a protective layer, etc., and may be equipped with the function of others [each class / these], respectively. Various ingredients can be used for formation of each class, respectively. About the ingredient used for the configuration layer of a light emitting device, or there, each reference quoted by the "Prior art" is typical, and it can usually carry out with reference to these publications except the point specified by this invention.

[0053] An anode plate can supply an electron hole to a hole injection layer, an electron hole transportation layer, a luminous layer, etc., a metal, an alloy, a metallic oxide, electrical conductivity compounds, or such mixture can be used, and a work function is an ingredient 4eV or more preferably. As an example, conductive metallic oxide, such as tin oxide, a zinc oxide, indium oxide, and indium tin oxide (ITO), To metals, such as gold, silver, chromium, and nickel, and a pan, or mixture or laminated material of these metals and conductive metallic oxide, Organic conductivity ingredients, such as inorganic conductivity matter, such as copper iodide and copper sulfide, the poly aniline, the poly thiophene, and polypyrrole, the laminated material of these and ITO, etc. are mentioned. Preferably It is conductive metallic oxide and ITO is desirable from points, such as productivity, high conductivity, and transparency, especially. Although the thickness of an anode plate is selectable suitably by the ingredient, usually the thing of the range of 10nm - 5 micrometers is desirable, and is 50nm - 1 micrometer more preferably, and it is 100nm - 500nm still more preferably.

[0054] What usually carried out the stratification of the anode plate on soda lime glass, alkali free glass, a transparence resin substrate, etc. is used. When using glass, in order to lessen the elution ion from glass, about the quality of the material, it is desirable to use alkali free glass. Moreover, when using soda lime glass, it is desirable to use what gave barrier coating sealant, such as a silica. If the thickness of a substrate is enough to maintain a mechanical strength, there will be especially no limit, but in using glass, it usually uses a thing 0.7mm or more preferably 0.2mm or more. Although various approaches are used for production of an anode plate with an ingredient, in ITO, film formation is carried out by approaches, such as an electron beam method, the sputtering method, resistance heating vacuum deposition, chemical reaction methods (sol-gel method etc.), and spreading of the distributed object of indium tin oxide, for example. By processing of washing and others, the driver voltage of a component is lowered or an anode plate can also raise luminous efficiency. For example, in ITO, UV-ozonization, plasma treatment, etc. are effective.

[0055] Cathode supplies an electron to an electronic injection layer, an electron transport layer, a luminous layer, etc., and is chosen in consideration of adhesion with the layer which adjoins negative electrodes, such as an electronic injection layer, an electron transport layer, and a luminous layer,

ionization potential, stability, etc. As an ingredient of cathode, a metal, an alloy, a metal halogenide, a metallic oxide, an electrical conductivity compound, Or such mixture can be used and it is alkali metal (for example, it Li(s)) as an example. the fluorides, such as Na, K, and Cs, and alkaline earth metal (for example, Mg --) Fluorides [, such as calcium,] and gold, silver, lead, aluminum, and sodium-potassium alloys or those mixed metals, Lithium-aluminium alloys or those mixed metals, magnesium-silver alloys, or those mixed metals, Rare earth metals, such as an indium and ITTERIBIUMU, etc. are mentioned, a work function is an ingredient 4eV or less preferably, and they are aluminum, lithium-aluminium alloys or those mixed metals, magnesium-silver alloys, or those mixed metals more preferably. Cathode can also take the laminated structure not only containing the monolayer structure of the above-mentioned compound and mixture but the above-mentioned compound and mixture. Although the thickness of cathode is selectable suitably by the ingredient, usually the thing of the range of 10nm - 5 micrometers is desirable, and is 50nm - 1 micrometer more preferably, and it is 100nm - 1 micrometer still more preferably. Approaches, such as an electron beam method, the sputtering method, resistance heating vacuum deposition, and a coating method, are used for production of cathode, and vapor-depositing a metal alone can also vapor-deposit two or more components to coincidence. Furthermore, the alloy which is possible also for vapor-depositing two or more metals to coincidence, and forming an alloy electrode, and was adjusted beforehand may be made to vapor-deposit. The lower one of the sheet resistance of an anode plate and cathode is desirable, and below its hundreds of ohms / ** are desirable.

[0056] If the layer which has the function in which an electron can be poured in from cathode or an electronic injection layer, and an electron transport layer, and the function, to which the poured-in charge is moved and the function to offer an electron hole and the place of electronic recombination and to make them emit light can be formed while the ingredient of a luminous layer can pour in an electron hole from an anode plate or a hole injection layer, and an electron hole transportation layer at the time of electric-field impression, it is good anything. Although the amine compound of this invention is preferably contained in a luminous layer, other luminescent material can also be used. For example, a benzoazazole derivative, a benzimidazole derivative, a benzothiazole derivative, A styryl benzene derivative, a polyphenyl derivative, a diphenyl butadiene derivative, A tetra-phenyl butadiene derivative, the North America Free Trade Agreement RUIMIDO derivative, a coumarin derivative, A perylene derivative, a peri non derivative, an oxadiazole derivative, an aldazine derivative, A PIRARIJIN derivative, a cyclopentadiene derivative, a bis-styryl anthracene derivative, The Quinacridone derivative, a pyrrolo pyridine derivative, a thiadiazolo pyridine derivative, Polymer compounds [, such as the poly thiophene, polyphenylene, and polyphenylene vinylene,], such as various metal complexes represented by the metal complex and rare earth complex of a cyclopentadiene derivative, a styryl amine derivative, an aromatic dimethylidyne compound, and an eight-quinolinol derivative, etc. are mentioned. Although especially the thickness of a luminous layer is not limited, usually the thing of the range of 1nm - 5 micrometers is desirable, and is 5nm - 1 micrometer more preferably, and it is 10nm - 500nm still more preferably. although especially the formation approach of a luminous layer is not what is limited -- resistance heating vacuum evaporationo, an electron beam, sputtering, a molecule laminated layers method, coating methods (a spin coat method, the cast method, dip coating method, etc.), print processes, and LB -- approaches, such as law and the ink jet method, are used and they are resistance heating vacuum evaporationo and a coating method preferably.

[0057] What is necessary is just to have the ingredient of a hole injection layer and an electron hole transportation layer in any of the function to pour in an electron hole from an anode plate, the function to convey an electron hole, and the function that carries out the obstruction of the electron poured in from cathode. As the example, a carbazole derivative, a triazole derivative, an oxazole derivative, An oxadiazole derivative, an imidazole derivative, the poly aryl alkane derivative, A pyrazoline derivative, a pyrazolone derivative, a phenylenediamine derivative, An arylamine derivative, an amino permutation chalcone derivative, a styryl anthracene derivative, full -- me -- non -- a derivative, a hydrazone derivative, a stilbene derivative, and a silazane derivative -- An aromatic series tertiary-amine compound, a styryl amine compound, an aromatic series JIMECHIRI DIN system compound, Conductive polymer oligomer, such as a porphyrin system compound, a polysilane system compound,

the Pori (N-vinylcarbazole) derivative, an aniline system copolymer, thiophene oligomer, and the poly thiophene, etc. is mentioned. Although especially the thickness of a hole injection layer and an electron hole transportation layer is not limited, usually the thing of the range of 1nm - 5 micrometers is desirable, and is 5nm - 1 micrometer more preferably, and it is 10nm - 500nm still more preferably. A hole injection layer and an electron hole transportation layer may be monolayer structures which consist of one sort of the ingredient mentioned above, or two sorts or more, and may be multilayer structure which consists of two or more layers of the same presentation or a different-species presentation. as the formation approach of a hole injection layer and an electron hole transportation layer -- vacuum evaporation technique and LB -- law, the ink jet method, and the approaches (a spin coat method, the cast method, dip coating method, etc.) of dissolving or distributing a solvent and coating it with said hole-injection transportation agent are used. In the case of a coating method, it can dissolve or distribute with a resinous principle, and a polyvinyl chloride, a polycarbonate, polystyrene, polymethylmethacrylate, poly butyl methacrylate, polyester, polysulfone, polyphenylene oxide, polybutadiene, Pori (N-vinylcarbazole), hydrocarbon resin, ketone resin, phenoxy resin, a polyamide, ethyl cellulose, vinyl acetate, ABS plastics, polyurethane, melamine resin, an unsaturated polyester resin, alkyd resin, an epoxy resin, silicon resin, etc. are mentioned as a resinous principle.

[0058] What is necessary is just to have the ingredient of an electronic injection layer and an electron transport layer in any of the function to pour in an electron from cathode, the function to convey an electron, and the function that carries out the obstruction of the electron hole poured in from the anode plate. As the example, a triazole derivative, an oxazole derivative, an oxadiazole derivative, full -- me -- non -- a derivative, an anthra quinodimethan derivative, and an anthrone derivative -- A diphenyl quinone derivative, a thiopyran dioxide derivative, a Calvi diimide derivative, Heterocycle tetracarboxylic acid anhydrides, such as a full ORENIRIDEN methane derivative, a JISUCHIRIRU pyrazine derivative, and naphthalene perylene, The various metal complexes represented by the metal complex which makes a ligand the metal complex of a phthalocyanine derivative and an eight-quinolinol derivative, a metal phthalocyanine and benzooxazole, and benzothiazole are mentioned. Although especially the thickness of an electronic injection layer and an electron transport layer is not limited, usually the thing of the range of 1nm - 5 micrometers is desirable, and is 5nm - 1 micrometer more preferably, and it is 10nm - 500nm still more preferably. An electronic injection layer and an electron transport layer may be monolayer structures which consist of one sort of the ingredient mentioned above, or two sorts or more, and may be multilayer structure which consists of two or more layers of the same presentation or a different-species presentation. as the formation approach of an electronic injection layer and an electron transport layer -- vacuum evaporation technique and LB -- law, the ink jet method, the approaches (a spin coat method, the cast method, dip coating method, etc.) of dissolving or distributing a solvent and coating it with said electron injection transportation agent, etc. are used. In the case of a coating method, it can dissolve or distribute with a resinous principle, and what was illustrated as a resinous principle in the case of for example, the hole-injection transportation layer can be applied.

[0059] What is necessary is just to have the function which inhibits that what promotes component degradation of moisture, oxygen, etc. as an ingredient of a protective layer enters in a component. As the example, In, Sn, Pb, Au, Cu, Ag, aluminum, Metals, such as Ti and nickel, MgO, SiO and SiO₂, aluminum₂O₃, GeO, NiO, CaO, BaO, Fe₂O₃, Y₂O₃, the metallic oxide of TiO₂ grade, MgF₂, LiF, AlF₃, the metal fluoride of CaF₂ grade, polyethylene, Polypropylene, polymethylmethacrylate, polyimide, poly urea, Polytetrafluoroethylene, polychlorotrifluoroethylene resin, poly dichlorodifluoroethene, The copolymer of chlorotrifluoroethylene and dichlorodifluoroethene, The copolymer which is made to carry out copolymerization of the monomer mixture containing tetrafluoroethylene and at least one sort of comonomers, and is obtained, the fluorine-containing copolymer which has cyclic structure in a copolymerization principal chain, the absorptivity matter of 1% or more of water absorption, the dampproof matter of 0.1% or less of water absorption, etc. are mentioned. the formation approach of a protective layer -- especially -- limitation -- there is nothing -- for example, a vacuum deposition method, the sputtering method, a reactive sputtering method, and MBE (molecular beam epitaxy) -- law, the ionized cluster beam method, the ion plating method, a

plasma polymerization method (the high-frequency excitation ion plating method), a plasma-CVD method, a laser CVD method, a heat CVD method, a gas source CVD method, a coating method, and the ink jet method are applicable.

[0060]

[Example] Although an example is given to below and this invention is concretely explained to it, thereby, this invention is not limited.

(Example 1) What produced ITO by the thickness of 150nm on the 25mmx25mmx0.7mm glass substrate (Tokyo Sanyo Vacuum Co., Ltd. make) was used as the transparency support substrate. It is the etching and washing back about this transparency support substrate, About 10nm of copper phthalocyanines was vapor-deposited. Next, Alq(tris (8-hydroxyquinolinate) aluminum) about 60nm was vapor-deposited under the condition of a substrate temperature room temperature in the vacuum of 10⁻³ to ten to 4 Pa in order as TPD (N, N'-bis(3-methylphenyl)-N, N-diphenyl benzidine) about 40nm and the 3rd layer. After installing the mask (mask with which luminescence area is set to 5mmx5mm) which carried out patterning on the organic thin film and carrying out 250nm vapor codeposition of magnesium:silver =10:1 within vacuum evaporationo equipment, 300nm of silver was vapor-deposited and the component 101 was produced. The TPD layer of a component 101 was changed into about 20nm, and EL elements 102-112 of the completely same presentation as 101 were produced except having newly prepared the interlayer of a configuration of being shown in Table 1 between the TPD layer and the Alq layer. Each host ingredient shown in Table 1: Vapor codeposition was carried out with the mass ratio of luminescent-material =10:1, and the thickness was set to 20nm. using source major unit by TOYO Corp. 2400 mold, a direct-current constant voltage is impressed to an EL element, and light is emitted -- making -- the brightness -- luminance-meter BM-8 and luminescence wavelength of TOPCON CORP. -- the Hamamatsu Photonics make -- it measured using spectrum analyzer PMA-11.

The result is shown in Table 2.

[0061]

[Table 1]

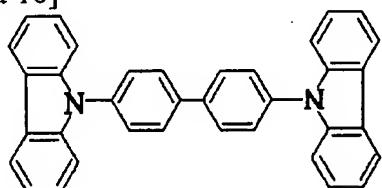
表1

発光素子No.	中間層ホスト材料	中間層発光材料	中間層膜厚(nm)
101(比較例)	なし	なし	-
102(比較例)	CBP	1-1	20
103(比較例)	CBP	1-1	40
104(比較例)	CBP	1-19	20
105(本発明)	HT-7	1-1	20
106(本発明)	HT-7	1-4	20
107(本発明)	HT-7	1-19	20
108(本発明)	HT-13	1-1	20
109(本発明)	HT-13	1-4	20
110(本発明)	HT-13	1-19	20
111(本発明)	HT-9	1-1	20
112(本発明)	HT-9	1-19	20

[0062]

[Formula 16]

CBP



[0063]

[Table 2]

表2

発光素子No.	発光λmax(nm)	印可電圧12Vでの輝度(cd/m ²)	発光の外部量子効率(%)
101(比較例)	524	8500	2.2
102(比較例)	513	36500	9.2
103(比較例)	513	22000	7.6
104(比較例)	523	28000	8.5
105(本発明)	512	38000	10.1
106(本発明)	515	32000	8.9
107(本発明)	522	32500	9.1
108(本発明)	512	37000	9.2
109(本発明)	516	35000	9.2
110(本発明)	519	31000	8.9
111(本発明)	511	41000	10.4
112(本発明)	519	32000	9.1

[0064] Moreover, after enclosing these components into the autoclave permuted by argon gas and saving them for bottom three days of a heating condition of 85 degrees C, the result of having performed same measurement-of-luminance - and luminescence side-like observation is shown in Table 3.

[0065]

[Table 3]

表3

発光素子No.	印可電圧12Vでの輝度(cd/m ²)	発光面状
101(比較例)	2500	×
102(比較例)	12000	×
103(比較例)	8800	×
104(比較例)	7500	×
105(本発明)	32000	○
106(本発明)	28000	○
107(本発明)	29000	○
108(本発明)	31000	○
109(本発明)	28500	○
110(本発明)	26500	○
111(本発明)	35000	○
112(本発明)	28500	○

[0066] The result of Table 2 shows what luminescence brightness also rises remarkably and its external quantum efficiency is also improving to 5% or more compared with the component which does not use an alt.methylation iridium complex (it compares with the base of 2% and is 7% or more) with the component which used the alt.metal-ized iridium complex by reference with CBP which is a well-known compound, and the compound of this invention. On the other hand, when the result after preservation of Table 3 is looked at, with the component using the compound of this invention, compared with the comparison samples 101-104, there are also few falls of brightness, the shape of a luminescence side of a component is also good, and it turns out that the preservation endurance of a component is improving sharply.

[0067] (Example 2) It is Pori (N-vinylcarbazole (PVK)) 40mg, 2, and 5-screw (1-naphthyl) on the ITO glass substrate etched and washed like the example 1. - The spin coat of the solution which dissolved 1, 3, and 4-oxadiazole (DNPB) 12mg and coumarin-6 10mg in 1,2-dichloroethane 3ml was carried out. The thickness of the organic layer at this time was about 120nm. Subsequently, cathode was vapor-deposited like the example 1 and EL element 201 was produced. EL elements 202-210 of the completely same presentation as 201 were produced except having added and used the compound shown in Table 4 instead of the coumarin -6 to the component 201. using source major unit by TOYO Corp. 2400 mold, a direct-current constant voltage is impressed to an EL element, and light is emitted -- making -- the brightness -- luminance-meter BM-8 and luminescence wavelength of TOPCON CORP. -- the Hamamatsu Photonics make -- it measured using spectrum analyzer PMA-11. The result is shown in Table 5.

[0068]

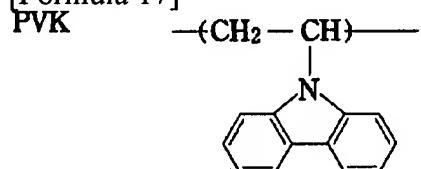
[Table 4]

表4

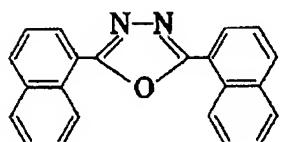
発光素子No.	添加したホスト材料(添加量mg)	添加した発光材料(添加量mg)
201(比較例)	なし	クマリン-6(10mg)
202(比較例)	CBP(20mg)	クマリン-6(10mg)
203(比較例)	CBP(20mg)	1-1(2mg)
204(本発明)	HT-6(20mg)	1-1(2mg)
205(本発明)	HT-6(20mg)	1-4(2mg)
206(本発明)	HT-6(20mg)	1-18(2mg)
207(本発明)	HT-12(20mg)	1-1(2mg)
208(本発明)	HT-12(20mg)	1-4(2mg)
209(本発明)	HT-17(20mg)	1-1(2mg)
210(本発明)	HT-17(20mg)	1-4(2mg)

[0069]

[Formula 17]



DNPB



[0070]

[Table 5]

表5

発光素子No.	発光λ _{max} (nm)	印加電圧10Vでの輝度(cd/m ²)	発光の外部量子効率(%)
201(比較例)	527	2750	0.67
202(比較例)	528	2300	0.65
203(比較例)	512	11000	3.1
204(本発明)	511	14500	3.5
205(本発明)	514	13000	3.2
206(本発明)	525	15500	3.6
207(本発明)	511	16000	3.8
208(本発明)	515	13000	3.3
209(本発明)	512	17500	3.7
210(本発明)	514	13500	3.3

[0071] With the component which used the alt.metal-ized iridium complex by reference like the example 1 with CBP which is a well-known compound, and the compound of this invention, it turns out that luminescence brightness also rises considerably and its external quantum efficiency is also improving to 3% or more compared with the base of less than 1% compared with the complex which does not use an alt.metal-ized complex so that clearly from the result of Table 5.

[0072]

[Effect of the Invention] High brightness and efficient luminescence are possible for the organic electroluminescence devices of this invention, and they are excellent in endurance.

[Translation done.]